

VU Research Portal

Assessment of global atmospheric ammonia using IASI infrared satellite observations

van Damme, M.

2015

document version

Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link to publication in VU Research Portal](#)

citation for published version (APA)

van Damme, M. (2015). *Assessment of global atmospheric ammonia using IASI infrared satellite observations*. [, Vrije Universiteit Amsterdam].

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal ?

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

E-mail address:

vuresearchportal.ub@vu.nl

7.2 Samenvatting

De natuurlijke stikstofcyclus op aarde is beïnvloed door antropogene emissies van reactief stikstof (Nr) componenten naar de atmosfeer als gevolg van de productie van energie en voedsel. De ammoniak (NH_3) emissies zijn in de afgelopen eeuw op wereldschaal verdubbeld en zijn nu ongeveer de helft van de totale Nr emissies. NH_3 is de belangrijkste basische component in de atmosfeer en reageert snel met de daarin aanwezige zuren tot aerosolen. Het is daarom een belangrijke component in het milieu, klimaat en menselijke gezondheid (Hoofdstuk 1).

NH_3 is vanwege de korte levensduur zeer variabel in tijd en ruimte, en terwijl er metingen op leefniveau goed mogelijk zijn, zijn ze schaars en hun ruimtelijke dekking is zeer heterogeen. Als gevolg hiervan worden globale ruimtelijke en temporele patronen van NH_3 -emissies slecht beschreven en vertegenwoordigen daarmee de grootste onzekerheid in de stikstofcyclus. Het doel van deze thesis is het onderzoeken en vaststellen van de ruimtelijke en temporele variabiliteit van NH_3 door gebruik van satellietgegevens om de bijdrage ervan aan de wereldwijde stikstofcyclus en de bijbehorende effecten te kwantificeren.

Recentelijk is het mogelijk geworden om met satelliet instrumenten de concentratie van NH_3 in de kolom tussen satelliet en aarde te meten en daarmee de schaarse grondmetingen aan te vullen. Vooral de Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), aan boord van de MetOp platforms meet met hoge resolutie de ruimtelijke en temporele variatie van de NH_3 concentratie.

IASI circuleert boven de aarde in een zon-synchrone baan over de polen die tweemaal per dag met een cirkelvormige (12 km diameter) pixelgrootte de gehele aarde bestrijkt om 9:30 en 21:30 (lokale zonnetijd bij overschrijding van de evenaar). Een verbeterde retrieval methode gebaseerd op de berekening van de Hyper-spectrale Range Index (HRI) wordt gedetailleerd beschreven in Hoofdstuk 2 en vergeleken met eerdere retrieval methoden. Deze aanpak benut volledig de hyper-spectrale karakteristieken van IASI op een breder spectrum ($800\text{--}1200\text{ cm}^{-1}$) waar NH_3 optisch actief is. Het maakt de bepaling van totale kolommen van IASI spectra wereldwijd twee keer per dag mogelijk zonder uitgebreide berekeningen en met een verbeterde detectiegrens. De retrieval procedure omvat twee stappen: het berekenen van een dimensieloze spectrale index (HRI) en de omzetting van deze index in NH_3 totale kolommen met behulp van opzoektabelen (LUT) welke afgeleid zijn van spectrale simulaties uitgevoerd onder verschillende atmosferische omstandigheden. Bij de retrieval wordt ook een schatting gemaakt van de onzekerheid in de totale kolom, die van groot belang is voor verdere analyse en bij vergelijkingen met modellen en metingen.

De wereldwijde verdeling van de NH_3 concentraties over vijf jaar (1 november 2007 tot 31 oktober 2012) gemeten met IASI/MetOp-A zijn afzonderlijk voor de ochtend en avond meettijden geanalyseerd. Het voordeel van de op de HRI gebaseerde retrieval methode ten opzichte van andere methoden is de identificatie van met name de kleinere emissiebronnen en het transport van NH_3 over de oceanen. Het voordeel van de hoge ruimtelijke resolutie van IASI is aangetoond met de vaststelling van de regionale verdeling van NH_3 in China en de eerste tijdreeksen van vier jaar worden kort besproken. Verder zijn vier jaar (1 januari 2008 tot 31 december 2011) IASI- NH_3 kolommen van de ochtend waarnemingen gevalueerd met LOTOS-EUROS model simulaties over heel Europa en West-Rusland. We beschrijven de toegepaste methodologie waarbij rekening wordt gehouden met de variatie in de retrieval gevoeligheid en de onzekerheid in de IASI metingen. De vier jaar gemiddelde verdelingen laten duidelijk de drie belangrijkste agrarische hotspots in Europa zien: de Po-vlakte, het continentale deel van Noordwest-Europa en de Ebro Vallei. Over het algemeen is er een goede overeenkomst tussen IASI en LOTOS-EUROS model resultaten, niet alleen in de brongebieden maar ook in de achtergrondgebieden en de zeen waarover transport van NH_3 zichtbaar is. De jaargemiddelden geven aan dat gemiddeld genomen de gemeten kolomconcentraties hoger zijn dan de gemodelleerde kolommen. Grote afwijkingen tussen IASI en model waarden komen voor in de geïndustrialiseerde gebieden in Oost Europa en Rusland wat wijst op een onderschatting of zelfs ontbreken van emissies in het model. Voor de drie hotspot gebieden geldt dat het seizoensverloop voor IASI en LOTOS-EUROS goed overeenkomen met in achtnaam van de gevoeligheid van de satellietwaarnemingen. De beste overeenkomst geldt voor Nederland zowel in grootte als voor het verloop in de tijd, waarschijnlijk omdat het emissieverloop in het model is gebaseerd op een uitgebreide meetdataset in Nederland. Ondanks dat de vergelijking van de dagelijkse tijdseries aangeven dat de dynamiek van de modelresultaten goed overeenkomt met

die van de observaties representeert het model de emissie timing en omvang onvoldoende. De vergelijking van de drie hotspots geeft aan dat een verbetering van het emissieverloop in het model noodzakelijk is. Tot slot laat het onderzoek naar de grootschalige branden in Rusland zien dat de gemodelleerde NH_3 pluimen niet voldoende verspreiding geven zoals blijkt uit de vergelijking met de metingen.

Hoofdstuk 4 beschrijft de vergelijking tussen NH_3 metingen van IASI met onafhankelijke grond- en vliegtuigmetingen. Voor de relatief weinig beschikbare grondmetingen geldt dat er een redelijke overeenkomst is tussen beide metingen. Maandgemiddelde IASI metingen komen redelijk overeen met grondmetingen die beschikbaar zijn voor Europa, China en Afrika, al is de variabiliteit van de grondmetingen hoger. De statistische analyse laat dan ook significante correlaties zien voor verschillende individuele meetpunten echter met lage hellingen en hoge as-afsnijding in de vergelijkingen. Hier zijn op zijn minst de volgende drie verklaringen voor: (1) beperkte representativiteit van de grond (punt) metingen ten opzichte van de IASI metingen die een groter gebied vertegenwoordigen; (2) het gebruik van een standaard verticaal concentratieprofiel van NH_3 in de retrieval die geen rekening houdt met de variatie in menglaaghoogte en andere processen van invloed op het profiel; en (3) het effect van de maandgemiddelde bepaling van de satelliet waarnemingen gezien de beperkte dekking in tijd.

De vliegtuigmetingen zijn zeer geschikt om te vergelijken met individuele IASI observaties. Veel hogere correlatie coëfficiënten werden gevonden dan in vergelijking met grondmetingen, bij het vergelijken van IASI-afgeleide volume mengverhoudingen met verticale concentratiemetingen uitgevoerd vanuit het NOAA WP-3D-vliegtuig tijdens de CalNex campagne in 2010. De resultaten tonen de waarde van validatie van de satelliet kolommen met metingen uitgevoerd op verschillende hoogten die een groot deel van de satelliet footprint representeren.

De zes jaar beschikbare IASI waarnemingen worden aan het einde van dit proefschrift voor het eerst gebruikt voor de analyse van regionale tijdreeksen (Hoofdstuk 5). We gebruiken de IASI metingen over de periode (1 januari 2008 tot 31 december 2013) om seizoensvariaties en inter-jaarlijkse variabiliteit te identificeren op sub-continente schaal. Dit is gedaan door analyse van de wereldwijde samengestelde seizoensgemiddelden en maandelijkse tijdreeksen afzonderlijk voor de IASI ochtend en avond metingen voor 12 regio's in de wereld (Europa, Oost-Rusland en Noord-Azi, Australi, Mexico, Zuid-Amerika, 2 sub-regio's voor Noord-Amerika en Zuid-Azi, 3 subregio's voor Afrika). Een karakteristieke seizoenscyclus is vastgesteld voor de meeste van deze gebieden. Op kleinere regionale schaal is de relatie tussen de NH_3 concentratie en emissieprocessen afgeleid door bepaling van de maximale kolommen in de maand op hoge ruimtelijke resolutie. In sommige regio's is een enkele bron van NH_3 dominant en eenduidig te duiden (bijvoorbeeld landbouw in Europa en Noord-Amerika, branden in centraal Zuid Afrika en Zuid-Amerika), terwijl in andere regio's de NH_3 bepaald wordt door een samenstelling van lokale bronnen en processen (bv Noord-Centraal-Afrika en Zuidwest-Azi).

Hoofdstuk 6 zet de resultaten van dit proefschrift in breder perspectief en geeft de lopende activiteiten en toekomstperspectieven.